

補助事業番号 2018M-120
補助事業名 平成30年度 1次元ナノカーボン材料のキャリア制御による
熱トランジスタの創製に関する補助事業
補助事業者名 名古屋大学大学院工学研究科 電子工学専攻 廣谷 潤

1 研究の概要

本研究では1次元ナノ材料中のキャリア(フォノン・電子・正孔・スピン)を電気的手法で独立に精密制御するアイデアに基づき、熱輸送の自在制御の実現を目指す。電子・正孔をキャリアとして用いるダイオードやトランジスタが世界中で幅広く普及し現代社会を豊かにしているのは、絶縁体/半導体/導体を使い分けた上で、電氣的に半導体のキャリアを容易に制御することが可能だからである。今回の熱トランジスタの新原理発案に至った着眼点は、まさに熱伝導も電氣的なトランジスタのようにキャリアを電氣的なゲート電圧印加によって制御することは可能か否か?という問いにある。熱を輸送するキャリア量を電氣的に精密に制御することが可能となれば、熱伝導を自在に制御することも夢ではない。今回提案する原理は、電氣的に変調可能なキャリアによる熱伝導が支配的な系を用いることで、熱トランジスタを実験的に創製可能な汎用性のある手法であり、熱科学分野にブレイクスルーをもたらすチャレンジングなテーマである。

2 研究の目的と背景

通常の熱伝導による伝熱を考えた場合、熱を輸送するキャリアは、格子振動(フォノン)、電子(正孔)、スピンによる寄与の和で与えられる。電子(正孔)、スピンは外部からの電磁場により制御することが可能であるものの、フォノンはエネルギー値と量の違いこそあれ、室温ではすべての材料に存在しているため、モノが接触していれば必ずフォノンによる熱伝導が発生してしまい完全な熱伝導の遮断は難しい。そこで申請者が考えた熱トランジスタを創製するためのスキームは以下の3点である。

- (1) 1次元ナノ材料のフォノンの状態密度の特性から、フォノンを局所的な周波数に閉じ込めることで周波数を局在化させる。これにより他のフォノン周波数をもつ材料との周波数マッチングを抑制し、フォノン弾性散乱を抑えて非弾性散乱を増加させることで熱抵抗を増大させる。
- (2) フォノンの平均自由行程よりも短い材料を用いることでサイズ効果(畳み込み)により存在できるフォノン周波数を制限することで、フォノン熱伝導成分を低減させる。
- (3) ドーピングにより電子・正孔濃度をコントロールすることで、電子工学分野のトランジスタのようなP型、N型熱伝導を可能とし、これらのキャリアを電氣的に精密制御する。これらのアイデアを実現するためには、1次元半導体ナノ材料で高いキャリア(電子・正孔)移動度をもつ材料が望ましい。カーボンナノチューブ(CNT)は $10^5 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ もの高い移動度を示す上、化学ドーピングにより容易にPN制御が可能であるため、本研究を達成す

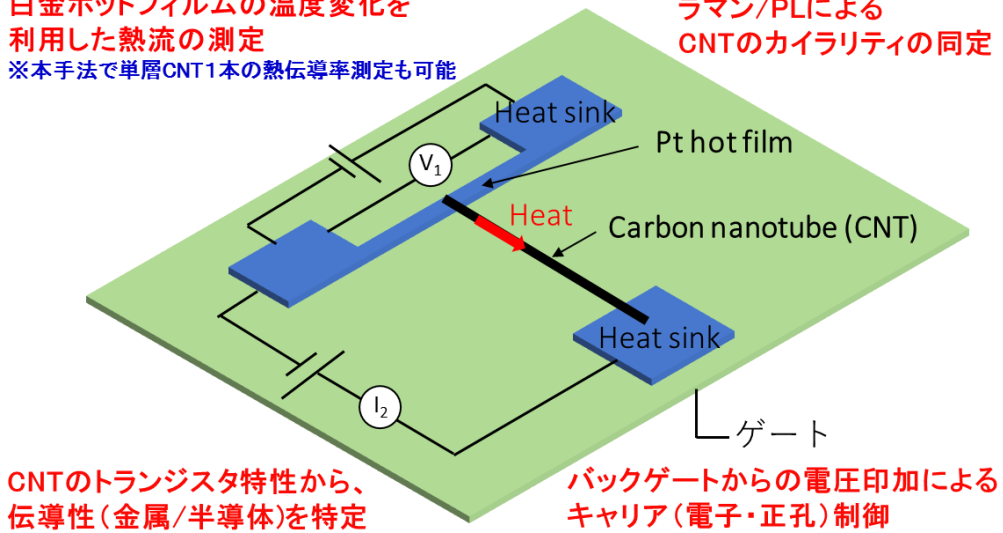
るための理想的な材料であると言える。

3 研究内容 <http://jhirotani.html.xdomain.jp/>

(1) カーボンナノチューブの電気・熱物性計測デバイス作製

白金ホットフィルムの温度変化を
利用した熱流の測定
※本手法で単層CNT1本の熱伝導率測定も可能

ラマン/PLによる
CNTのキラリティの同定



CNTのトランジスタ特性から、
伝導性(金属/半導体)を特定

バックゲートからの電圧印加による
キャリア(電子・正孔)制御

図1 カーボンナノチューブのキャリア制御及び熱伝導測定手法

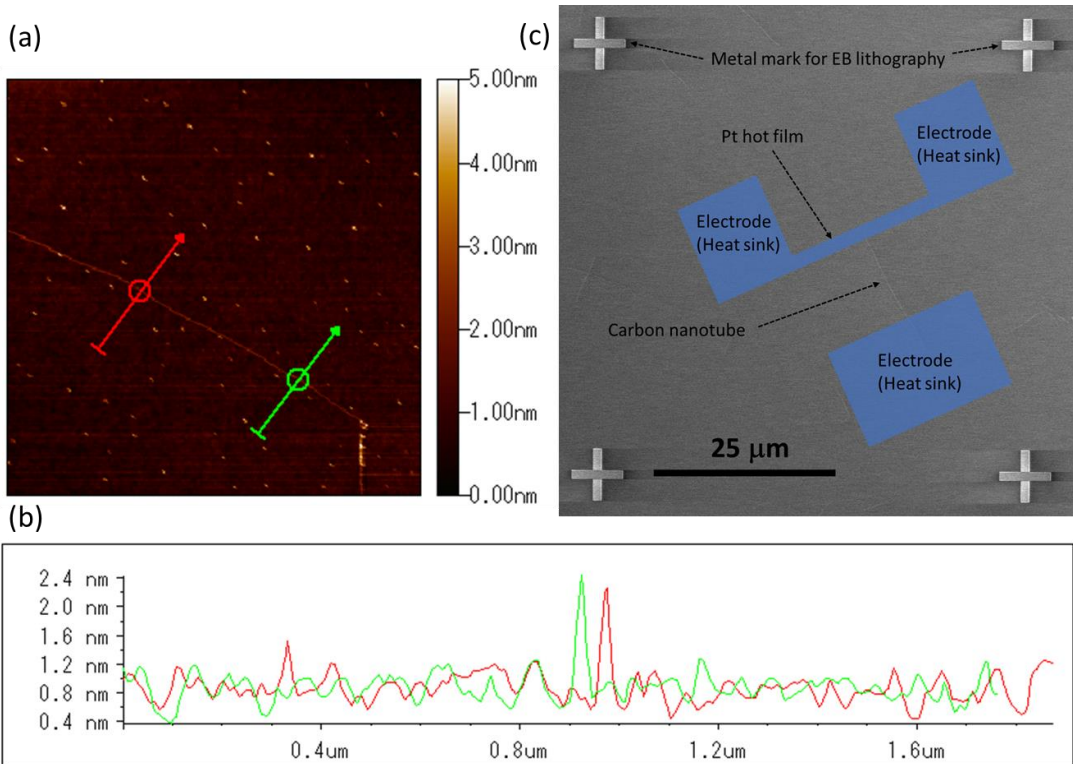


図2. (a, b) 原子間力顕微鏡によるCNTの観察結果と(c) デバイス概略図

(2) 浮遊触媒気相成長法と熱勾配法によるCNTの直接基板堆積技術の確立

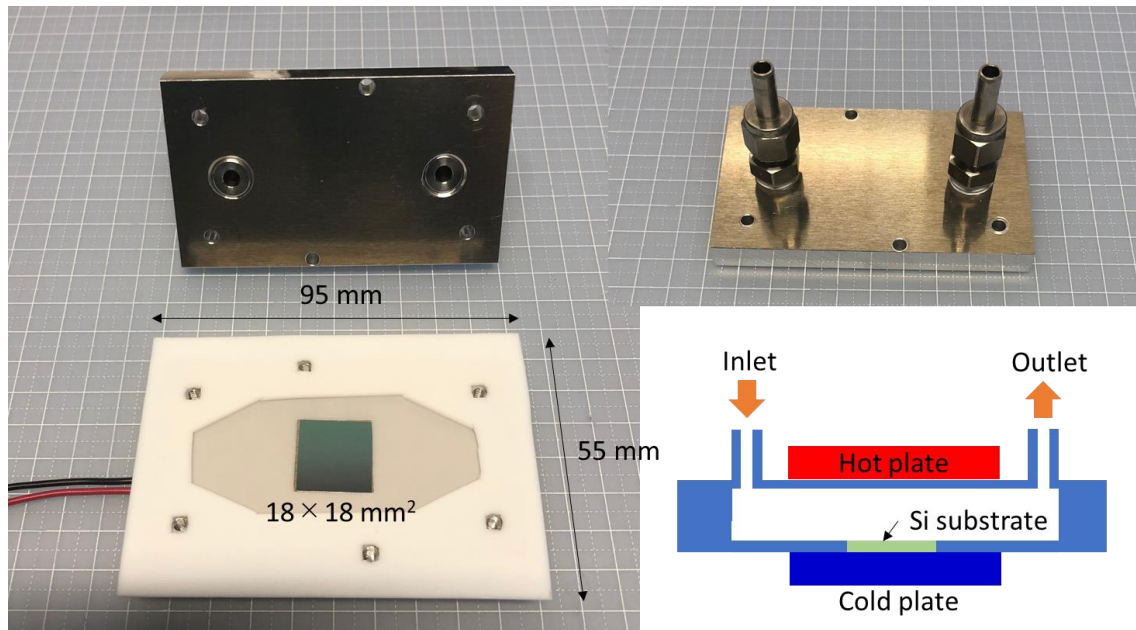


図3. 浮遊触媒気相成長法における熱勾配CNT直接堆積手法概略図

本研究ではCNTなどのナノワイヤの熱伝導率測定手法として高信頼性な手法として知られる白金ホットフィルムを用いたT字一体型センサによる測定手法を採用し、CNTの電気伝導・熱伝導を探索する。CNTの構造や物性をラマン/フォトルミネッセンス(PL)測定と電気特性から厳密に把握した上で、CNTの熱伝導率のゲート電圧依存性を評価する。ゲート電圧の有無によりキャリアごとの熱伝導への寄与を把握できるとともに、キャリア変調による熱流量の変化から熱トランジスタの原理実証が可能となる。

デバイス作製工程については、Si基板上にアルコールCVD法によりCNTを成長させた後、EBリソグラフィ技術を駆使して白金ホットフィルムをCNT上に作り込む。白金ホットフィルムのCNTの有無による温度変化からCNTの物性値を得ることができる。

またCNT間に電圧を印加してバックゲート電圧によるキャリア制御を行うことで、CNTが金属/半導体を同定できる。さらに架橋されたCNTからの強いラマン散乱光/フォトルミネッセンス(PL)光からCNTのカイラリティを厳密に把握する。またラマン散乱光からのG/D比によりCNTの質(≒欠陥量)を把握することができる。本計測手法では白金ホットフィルムで発生した熱がCNTを伝わって、もう一端のヒートシンクに熱が逃げることになる。ホットフィルムでは自由電子による熱伝導が支配的であるので、ホットフィルムの熱をCNT側のキャリアが受け取ることになるのだが、半導体CNTの場合、金属との間にショットキー障壁が存在する。これは仕事関数の大きい金属を用いればキャリア注入を容易にできるが、この白金ホットフィルム/CNT間(金属/半導体)の界面における熱の受け渡しも興味深い研究対象である

と考えている。そこでホットフィルムに採用する金属はPt以外にもAuなども用いることで仕事関数を変化させ、CNT/金属間の熱の受け渡しについて理解を深める。さらにCNTにドーピングを施すことでCNTのP型/N型伝導を制御した上で、熱計測を行い、伝導型による熱輸送特性の影響について評価する。

またフォノン熱伝導を抑えるためにMD計算によりカイラリティ（異なる直系）ごとにフォノン状態密度を計算するとともに、熱伝導率の長さ依存性を計算してデバイス作製に反映させる。さらに故意にCNTに電子線を照射することで欠陥を与えG/D比を低下させることで、フォノン伝導成分を低減させることができ、G/D比と熱伝導率の依存性を調べることが可能となる。

浮遊触媒気相成長法によりSi基板の上に堆積させたCNTの原子間力顕微鏡像から数ミクロン程度の長さに渡って1nm程度の高さであり、孤立したCNTを成長できていることを確認した。その後、同様のCNT上に電極とヒートシンクを兼ねるTi/Pt真空蒸着により成膜した。なおリソグラフィで十字マークを形成し、EBリソグラフィでCNTの直上に正確に電極を形成するための描画用アライメントマークとして用いた。

電極形成後、CNTの電気特性評価結果から、ゲート電圧に応じてソースドレイン間の電流量が変化しない金属的特性とゲート電圧に応じてp型の半導体的特性を示す結果を得た。CNTの電気特性を大気中で計測した場合、大気中の水分や酸素によってp型をしめすことが知られており、妥当な結果であると言える。

その後、CNTと電極下部のSiO₂をBHF溶液でエッチングしたところ、電極が剥がれてしまう問題とPtホットフィルムが壊れる問題が発生した。これは、CNT成長段階で基板が汚れてしまった結果、その後の形成した電極とSi基板の密着性が悪い可能性などが考えられる。今後も引き続き、熱計測用のデバイス作製のプロセス改良を行い、CNTの熱計測と熱伝導変調実験に取り組む予定である。

またシミュレーションに関して、今年度はLAMMPSを用いたナノカーボン材料の物性評価用シミュレーターの構築を行った。まずは欠陥の有無を考慮したグラフェンに関するシミュレーションを行い、計算の妥当性を確認できた。構築したシミュレーターを用いてCNTのフォノン熱伝導に関する計算を引き続き行っていく。

4 本研究が実社会にどう活かされるかー展望

熱を自由自在に制御できる技術を確立することができれば、寒いときには断熱、暑いときには放熱などを同じ材料で自在に制御することが可能になる。本研究では、電気のトランジスタと同じ原理を熱の世界にも適応することで熱の自在制御を目指すものであり、得られる成果は衣食住の幅広い分野で生かされる。

さらに、今回得られた成果であるカーボンナノチューブの電気物性評価結果はカーボンナノチューブ電子デバイスを研究する研究者等にとって有益な情報であり、さらに現在も継続して実施している熱物性結果は熱工学の研究者などへも有益な結果となる。

5 教歴・研究歴の流れにおける今回研究の位置づけ

今回の実施した研究「平成30年度 1次元ナノカーボン材料のキャリア制御による熱トランジスタの創製に関する補助事業」は研究代表者が専門とする熱工学と電子工学を結びつける意味をもつ研究であった。カーボンナノチューブの成長条件検討に始まり、電子線リソグラフィなどを駆使したデバイス作製プロセスなど、実験途中でのトラブルなど困難を極めたが、なんとか電気特性評価、シミュレーションにナノカーボン特性評価は実施できた。デバイス作製プロセスにおける問題点も把握できているので、今回の補助事業を引き続き実施していき、CNTの電気物性と熱物性を探究しつつ、熱トランジスタの創製に関する成果を創出する。

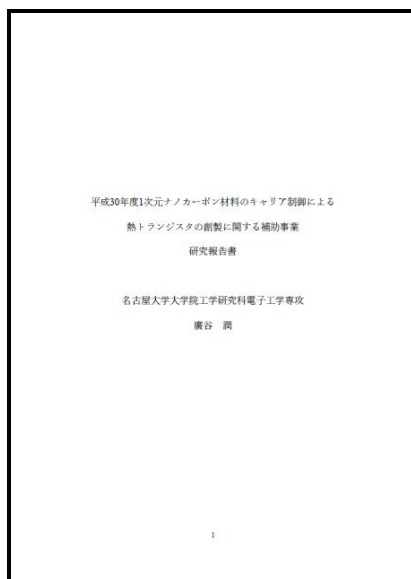
6 本研究にかかわる知財・発表論文等

1. 嶋崎悠斗、廣谷潤、岸本茂、大野雄高, "Passivation with Parylene-C in Carbon Nanotube Thin-film Transistors", 第55回フラーレン・ナノチューブ・グラフェン総合シンポジウム, 2018.09.13, 東北大学, 3P-17
2. 鹿嶋大雅、廣谷潤、岸本茂、大野雄高, "Design and fabrication of carbon nanotube analog integrated circuits", 第55回フラーレン・ナノチューブ・グラフェン総合シンポジウム, 2018.09.13, 東北大学, 3P-4
3. Lijun Liu, Katsumi Hagita, Jun Hirotani, A reactive molecular dynamics study of graphene as a protective barrier against hydrogen embrittlement, *Proceedings of the 9th International Conference on Computational Methods*, Rome, 6-10 August, 2018.

7 補助事業に係る成果物

(1) 補助事業により作成したもの

平成30年度1次元ナノカーボン材料のキャリア制御による熱トランジスタの創製に関する補助事業 研究報告書



WEBに掲載した研究報告書

(2)(1) 以外で当事業において作成したもの
特になし。

8 事業内容についての問い合わせ先

所属機関名： 名古屋大学大学院工学研究科
ナゴヤダイガクダイガクインコウガクケンキュウカ)

住 所： 〒460-8601
愛知県名古屋市千種区不老町

担 当 者： 助教 廣谷 潤 (ヒロタニ ジュン)

担 当 部 署： 電子工学専攻 (デンシコウガクセンコウ)

E - m a i l： hirotani@nuee.nagoya-u.ac.jp

U R L： <https://www.nuee.nagoya-u.ac.jp/electronic/index.html>